

This Page Is Inserted by IFW Operations
and is not a part of the Official Record

BEST AVAILABLE IMAGES

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images may include (but are not limited to):

- BLACK BORDERS
 - TEXT CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES
 - FADED TEXT
 - ILLEGIBLE TEXT
 - SKEWED/SLANTED IMAGES
 - COLORED PHOTOS
 - BLACK OR VERY BLACK AND WHITE DARK PHOTOS
 - GRAY SCALE DOCUMENTS
-

IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.

**As rescanning documents *will not* correct images,
please do not report the images to the
Image Problems Mailbox.**

PCTWELTORGANISATION FÜR GEISTIGES EIGENTUM
Internationales BüroINTERNATIONALE ANMELDUNG VERÖFFENTLICHT NACH DEM VERTRAG ÜBER DIE
INTERNATIONALE ZUSAMMENARBEIT AUF DEM GEBIET DES PATENTWESENS (PCT)

(51) Internationale Patentklassifikation 6 : C09J 161/30	A1	(11) Internationale Veröffentlichungsnummer: WO 97/29161 (43) Internationales Veröffentlichungsdatum: 14. August 1997 (14.08.97)
(21) Internationales Aktenzeichen: PCT/EP97/00377 (22) Internationales Anmeldedatum: 29. Januar 1997 (29.01.97) (30) Prioritätsdaten: 196 03 988.6 5. Februar 1996 (05.02.96) DE (71) Anmelder: BASF AKTIENGESELLSCHAFT [DE/DE]; D-67056 Ludwigshafen (DE). (72) Erfinder: DORMEYER, Dieter; Raiffeisenstrasse 13, D-67136 Fußgönheim (DE). EBERT, Joachim; Sternstrasse 8, D-67063 Ludwigshafen (DE). EBNER, Manfred; Pilgerstrasse 5, D-67069 Ludwigshafen (DE). PFÜTZ, Eberhard; Sunsweilerstrasse 18, D-55299 Nackenheim (DE). REINER, Tilmann; Johann-Kraus-Strasse 17, D-67227 Frankenthal (DE). SCHATZ, Hermann; Neubergstrasse 50, D-67435 Neustadt (DE).	(81) Bestimmungsstaaten: CZ, NO, PL, SK, europäisches Patent (AT, BE, CH, DE, DK, ES, FI, FR, GB, GR, IE, IT, LU, MC, NL, PT, SE). Veröffentlicht <i>Mit internationalem Recherchenbericht.</i>	
(54) Title: TWO-COMPONENT GLUE SYSTEM FOR THE PRODUCTION OF LAMINATED WOOD PANELS (54) Bezeichnung: ZWEIKOMPONENTEN-LEIMSYSTEM FÜR DIE HERSTELLUNG VON BRETT-SCHICHTHOLZ (57) Abstract <p>A two-component glue-system suitable for the production of laminated wood panels consists of (a) an aqueous hardener mixture (component (a)) which contains (a1) 3 to 15 wt % of a Brönsted acid; (a2) 20 to 40 wt % of a mineral filler; (a3) 2 to 8 wt % of a thickener; (a4) 40 to 60 wt % water; and (b) a melamine resin (component (b)).</p> (57) Zusammenfassung <p>Zweikomponenten-Leimsystem, das für die Herstellung von Brett-Schichtholz (BS-Holz) geeignet ist, bestehend aus: a) einer wässrigen Härtermischung (Komponente (a)), enthaltend a1) 3 bis 15 Gew.-% einer Brönstedt-Säure, a2) 20 bis 40 Gew.-% eines mineralischen Füllstoffs, a3) 2 bis 8 Gew.-% eines Verdickungsmittels, a4) 40 bis 60 Gew.-% Wasser und b) einem Melaminharz (Komponente (b)).</p>		

Zweikomponenten-Leimsystem für die Herstellung von Brett-
schichtholz

5 Beschreibung

Die vorliegende Erfindung betrifft ein Zweikomponenten-Leimsystem, das für die Herstellung von Brettschichtholz (BS-Holz) geeignet ist, bestehend aus

10

a) einer wässrigen Härtermischung (Komponente (a)), enthaltend

a1) 3 bis 15 Gew.-% einer Bronstedt-Säure

15

a2) 20 bis 20 Gew.-% eines mineralischen Füllstoffs

a3) 2 bis 8 Gew.-% eines Verdickungsmittels

a4) 40 bis 60 Gew.-% Wasser

20

und

b) einem Melaminharz (Komponente (b)).

25 Weiterhin betrifft die Erfindung Verfahren zur Herstellung von BS-Holz unter Verwendung des Zweikomponenten-Leimsystems sowie das auf diese Weise hergestellte Schichtholz.

Aus verleimten Holzlamellen aufgebautes Brett-Schichtholz (BS-
30 Holz) ist allgemein bekannt (vgl. Informationsdienst Holz, Holzleimbau, Bauen mit Brettschichtholz; Hrsg. Arbeitsgemeinschaft Holz e.V. und Centrale Marketinggesellschaft, ISSN-Nr. 0446-2114). Diese BS-Hölzer werden vorwiegend als tragende Bauteile bei Gewerbe-, Wohn- und öffentlichen Bauten eingesetzt.

35

Auf diesem anwendungstechnischen Gebiet werden hohe Anforderungen an die mechanische Festigkeit der Bauteile gestellt. Die Verbundfestigkeit muß auch nach vielen Jahren trotz Einwirkung von Witterungseinflüssen wie Temperaturwechsel und Feuchtigkeit ausreichend hoch sein.

40

Die für die Herstellung tragender Bauteile verwendeten Leimsysteme müssen deshalb umfangreiche Prüfungen durch staatliche Prüfinstitute absolvieren, um die erforderliche bauaufsichtliche
45 Eignungsempfehlung zu erhalten.

Grundlage dieser Prüfung stellt die DIN 68141 in Verbindung mit DIN EN 301 und DIN EN 302 Teil 1 bis 4 dar. Im Rahmen der Eigenüberwachung der Herstellbetriebe ist die Qualität der produzierten Bauteile durch die Delaminierungsprüfung nach DIN EN 386 und 5 DIN EN 391 nachzuweisen.

Neben denn Anforderungen an die Leimsysteme im Hinblick auf die Gebrauchseigenschaften der mit ihnen hergestellten Bauteile werden von den BS-Holz-Herstellern bestimmte Eigenschaften, die die 10 Verarbeitung der Leimsysteme betreffen, gewünscht. Einerseits soll die Antrockenzeit der Leime ausreichend lang sein, damit Holzlamellen, auf die der Leim aufgetragen wurde, innerhalb eines gewissen Zeitraums verarbeitet werden können. Andererseits sollen die verleimten Bauteile bereits möglichst kurze Zeit nach ihrer 15 Herstellung mechanisch belastbar sein. Das setzt voraus, daß der Leim nach dem Zusammenfügen der beleimten Bretter rasch aushärtet.

Es ist in der Fachwelt allgemein bekannt, daß sich für die Herstellung von BS-Holz, das für die Herstellung von tragenden Bauelementen verwendet werden kann, Phenol-Resorcin-Harze eingesetzt werden können. Diese Schichtholzelemente weisen jedoch den Nachteil auf, daß sich die Leimfugen aufgrund der dunklen Eigenfarbe der Phenol-Resorcin-Harze im fertigen Bauteil als schwarzes Linienmuster abzeichnet, was häufig aus Gründen der Ästhetik abgelehnt wird. 25

Aus dem schwedischen Patent 78 10 982 sind flüssige Härter bekannt. Dabei handelt es sich um wässrige Suspensionen, enthaltend, bezogen auf die wässrige Suspension, 1 bis 25 Gew.% Säure oder säureabspaltende Stoffe, 30 bis 90 Gew.-% Füllmittel, beispielsweise ein mineralisches Füllmittel wie Kaolin, 0,5 bis 10 Gew.-% Verdickungsmittel und 0 bis 50 Gew.-% eines Formaldehydabsorbers. Der Härter weist einen Trockengehalt zwischen 35 und 35 85 Gewichtsprozenten und eine Viskosität von 2000 bis 12000 mPa*s bei 20°C auf.

Es wird empfohlen, den Härter zur Aushärtung von Harnstoff-Formaldehyd-Harzen einzusetzen. Mit Hilfe dieser Binder-Härter-Systeme hergestelltes BS-Holz weist jedoch nicht die erforderliche Festigkeit auf, insbesondere wenn es in der Außenanwendung eingesetzt wird. 40

Aufgabe der vorliegenden Erfindung war es deshalb, Zweikomponenten-Leimsysteme für die Herstellung von BS-Holz bereitzustellen, die keine dunklen Leimfugen und die von der Bauindustrie geforderten mechanischen Eigenschaften aufweisen.

5

Demgemäß wurden die eingangs definierten Zweikomponenten-Leimsysteme bereitgestellt.

Die Härtermischung (Komponente (a)) weist bevorzugt eine Viskosität von 3000 bis 10 000, besonders bevorzugt von 4000 bis 8000 mPa·s auf, bezogen auf eine Meßtemperatur von 20°C und eine Schergeschwindigkeit von 30 s⁻¹.

Bevorzugt enthält die Härtermischung

15

a1) 5 bis 12, besonders bevorzugt 7 bis 10 Gew.-% einer Bronstedt-Säure

a2) 20 bis 40, besonders bevorzugt 25 bis 35 Gew.-% eines mineralischen Füllstoffs

20

a3) 2 bis 8, besonders bevorzugt 4 bis 6 Gew.-% eines Verdickungsmittels

a4) 35 bis 60, besonders bevorzugt 40 bis 55 Gew.-% Wasser.

25

Geeignete Bronstedt-Säuren sind beispielsweise Mineralsäuren wie Phosphorsäure oder organische Säuren, z.B. Essigsäure, Propionsäure, Oxalsäure oder vor allem Ameisensäure.

30

Als mineralische Füllstoffe kommen vor allem Kaolin oder andere Alumosilikate mit Schichtstruktur in Betracht.

Als Verdickungsmittel ist Polyvinylalkohol oder teilhydrolysiertes Polyvinylacetat oder deren Gemische geeignet. Polyvinylalkohol ist kommerziell z.B. unter der Bezeichnung Moviol® (Fa. Hoechst) erhältlich. Beim teilhydrolysierten Polyvinylacetat sind mindestens 50 %, bevorzugt 80 % der im Polyvinylacetat ursprünglich vorhandenen Estergruppen hydrolysiert. Die Komponente (c) wird in Mengen von 1 bis 20 Gew.-%, bevorzugt 1 bis 8 Gew.-% verwendet.

35

40

Neben dem mineralischen Füllstoff kann die Härtermischung einen organischen Füllstoff enthalten. Dabei handelt es sich im allgemeinen um in Holzleimen üblicherweise enthaltene Füllstoffe, be-

45

vorzugt in Form von Fasern, beispielsweise Cellulose oder Holzmehl.

Der organische Füllstoff ist üblicherweise in Mengen von 10 bis 30 Gew.-%, bezogen auf den mineralischen Füllstoff in der Komponente (a), enthalten.

Darüber hinaus enthält die Härtermischung mit Vorteil 1 bis 20, besonders bevorzugt 3 bis 8 Gew.-%, bezogen auf die Gesamtmenge der Komponenten (a1) bis (a4), Resorcin, wenn BS-Holz benötigt wird, das besonders widerstandsfähig gegenüber Feuchteeinwirkung ist.

Weiterhin können noch übliche Hilfs- und Zusatzstoffe wie Entschäumer oder Emulgatoren in einer Menge von bis zu 3 Gew.-%, bezogen auf die Mischungskomponenten (a1) bis (a4) der Härtermischung zugesetzt werden.

Bei der Komponente (b), dem Melaminharz, kommen handelsübliche Harze in Betracht, die beispielsweise aus Ullmanns Encyklopädie der technischen Chemie, 4. Auflage, Band 7, S. 408 und 409 bekannt sind.

Dabei handelt es sich bevorzugt um Melaminharze aus

25

b1) Melamin

b2) 2,1 bis 8,4, bevorzugt 2,5 bis 4,6 mol Formaldehyd pro Mol Melamin.

30

b3) 0 bis 10, bevorzugt 0 bis 0,5 mol einer weiteren Verbindung, die fähig ist, mit Formaldehyd in einer Polykondensations- oder -additionsreaktion zu reagieren, pro mol Formaldehyd.

35 Das Melamin (Komponente b1) wird im allgemeinen in fester Form eingesetzt.

Der Formaldehyd (Komponente b2) wird im allgemeinen in Form einer 30 bis 50 gew.-%igen Lösung oder in Form von Paraformaldehyd eingesetzt.

40

Als Komponenten (b3) kommen vor allem solche in Betracht, die zusammen mit Formaldehyd bei der Herstellung von Aminoplastharzen eingesetzt werden (vgl. Ullmanns Encyklopädie der technischen Chemie, 4. Auflage, Band 7, S. 403 bis 422), also z.B. Harnstoff, Dicyandiamid und Guanamine wie Benzoguanamin und Acetoguanamin. Bisguanamine wie Adipo-, Glutaro- oder Methylolglutarobisguanamin

sowie Verbindungen, welche mehrere, z.B. kondensierte Aminotriazin-Kerne enthalten, sind ebenfalls geeignet.

Besonders bevorzugt enthält die Komponente (b)

5

- b1) 15 bis 30 Gew.-% Melamin
- b2) 15 bis 30 Gew.-% Formaldehyd
- b3) 5 bis 25 Gew.-% Harnstoff, Dicyandiamid und/oder Guanamine.

- 10 Die Herstellung der Melaminharze erfolgt vorzugsweise nach den allgemein üblichen Verfahren, die beispielsweise aus Ullmanns Encyklopädie der technischen Chemie, 4. Auflage, Band 7, S. 403 bis 422 bekannt sind.
- 15 Die Umsetzung erfolgt üblicherweise in wässriger Lösung, wobei der Wasseranteil, bezogen auf den Gewichtsanteil der Komponenten (b1) bis (b3) 25 bis 50 Gew.-% ausmacht. Der pH-Wert liegt dabei im allgemeinen bei 7 bis 10, 5 bevorzugt bei 9,0 bis 10,0 und die Reaktionstemperatur bei 60 bis 110, bevorzugt bei 80 bis 110°C.
- 20 Im allgemeinen wird die Umsetzung so lange durchgeführt, bis ein Ausgangsmelaminharz bzw. ein elastifiziertes Melaminharz entstanden ist. Diese Umsetzungsprodukte weisen als 60 gew.-%ige wässrige Lösungen bei einer Temperatur von 20°C üblicherweise eine
- 25 Viskosität von 350 bis 1200, bevorzugt 450 bis 800 mPa·s auf. Unter den genannten Reaktionsbedingungen sind hierfür im allgemeinen Reaktionszeiten von 70 bis 150 min erforderlich.
- Die Umsetzung kann beendet werden, indem man die Reaktionsmi-
- 30 schungen auf Temperaturen unterhalb 50°C, bevorzugt auf 20 bis 30°C abkühlt.
- Im allgemeinen werden wässrige elastifizierte Melaminharze gewünscht, besonders solche mit einem Feststoffgehalt von 50 bis
- 35 70 Gew.-%. Sofern die Melaminharze nicht schon unmittelbar nach ihrer Herstellung mit dem gewünschten Feststoffgehalt vorliegen, ist es möglich, den Feststoffgehalt durch Abdestillieren von Wasser, vorzugsweise im Vakuum, oder durch Vermischung mit Wasser zu verändern.
- 40 Zur Erhöhung der Elastizität der Leime enthalten die Leime mit Vorteil aliphatische Polyole in Mengen von 5 bis 18, bevorzugt von 9 bis 15 Gew.-%, bezogen auf den Feststoffgehalt der Melaminharze. Diese Polyole können bereits den Ausgangsstoffen, die zur
- 45 Herstellung der Melaminharze eingesetzt werden, beigemischt werden oder dem fertigen Melaminharz zugesetzt werden. Es kommen vor allem C₂- bis C₂₀-Polyole, bevorzugt Diöle wie Ethylenglykol,

Diethylenglykol, Dipropylenglykol und Butandiol sowie Triole wie Glycerin in Betracht.

Weiterhin können zur Verbesserung der anwendungstechnischen Eigenschaften der Leime, z.B. der Reaktivität und der Flexibilität der Leime Modifizierungsmittel wie ϵ -Caprolactam und andere Carbonsäureamide in Mengen von 1 bis 7, bevorzugt von 1 bis 3 Gew.-%, bezogen auf den Feststoffgehalt der Melaminharze, den Melaminharzen hinzugefügt werden.

10 Daneben können die Melaminharze gegebenenfalls bis 20, bevorzugt 9 bis 15 Gew.-%, bezogen auf den Feststoffgehalt, organische Füllmittel enthalten. Hierfür sind die gleichen organischen Füllmittel geeignet, die auch in der Komponente (a) enthalten sein
15 können.

Das erfindungsgemäße Zweikomponenten-Leimsystem kann zur Anwendung kommen, indem man durch Vermischung der Komponenten (a) und (b) eine Leimflotte herstellt und diese zumindest auf eine der
20 beiden Oberflächen aufträgt, die durch den Leim miteinander verbunden werden sollen.

Bevorzugt bestehen die Leimflotten aus den Komponenten (a) und (b) im Gewichtsverhältnis von 0,1:1 bis 0,5:1, besonders bevorzugt 0,2:1 bis 0,4:1.
25

Die Herstellung der Leimflotten aus den Komponenten (a) und (b) ist unkritisch und erfolgt zweckmäßigerweise durch Einrühren der einen Komponente in die andere.

30 Ganz besonders bevorzugt sind die Leimflotten wie folgt zusammengesetzt, wobei sich die aufgeführten Bestandteile zu 100 Gew.-Teilen ergänzen:

35	0,5 bis 2,5	Gew.-Teile Ameisensäure
	0,3 bis 1,5	Gew.-Teile Verdicker
12	bis 25	Gew.-Teile Melamin in Form des Melaminharzes
4	bis 21	Gew.-Teile Harnstoff in Form des Melaminharzes
12	bis 25	Gew.-Teile Formaldehyd in Form des Melaminharzes
40	4 bis 12	Gew.-Teile Organisches Füllmittel
	3 bis 13	Gew.-Teile C ₂ - bis C ₂₀ -Polyole
	0 bis 5	Gew.-Teile Modifizierungsmittel
	0 bis 4	Gew.-Teile Resorcin
	3 bis 9	Gew.-Teile Mineralisches Füllmittel
45	auf 100	Gew.-Teile Rest-Wasser

Die erfindungsgemäßen Zweikomponenten-Leimsysteme eignen sich vor allem zum Verleimen von Massivholzteilen. Besonders geeignet sind sie zur Herstellung von BS-Holz, das aus mehreren, bevorzugt 5 bis 70 Holzlamellen, z.B. Holzbrettern mit einer Dicke von 10 bis 543 mm, aufgebaut sind.

Die Verleimung der Holzlamellen erfolgt zweckmäßigerweise nach einem der in der Holzindustrie allgemein bekannten Verfahren.

10 Dabei kann man beispielsweise so vorgehen, daß man

Ia durch Vermischung der Komponenten (a) und (b) eine Leimflotte herstellt,

15 IIa beleimte Holzlamellen herstellt, indem man die Leimflotte einseitig oder beidseitig auf Holzlamellen aufträgt, und

IIIa die beleimten Holzlamellen miteinander oder mit unbeleimten Holzlamellen so in Kontakt bringt, daß sich eine Leimschicht
20 zwischen je zwei zu verleimenden Holzlamellen befindet,

mit der Maßgabe, daß die Arbeitsschritte Ia bis IIIa innerhalb eines Zeitraums von 45 bis 150 min, bevorzugt von 60 bis 120 min durchgeführt werden,

25

oder

Ib beleimte Holzlamellen herstellt, indem man getrennt voneinander die Komponenten (a) und (b) einseitig oder beidseitig auf
30 Holzlamellen aufträgt, so daß sowohl Komponente (a) als auch Komponente (b) auf beiden Seiten oder einer Seite der Holzlamelle aufgetragen ist, und

IIb die beleimten Holzlamellen miteinander oder mit unbeleimten Holzlamellen so in Kontakt bringt, daß sich die beiden Leimkomponenten zwischen jeweils 2 Holzlamellen befinden,
35

oder

40 Ic beleimte Holzlamellen herstellt, indem man getrennt voneinander die Komponenten (a) und (b) einseitig oder beidseitig auf Holzlamellen aufträgt, so daß sich nur jeweils eine Komponente des Zweikomponenten-Leimsystems auf der gleichen Seite einer Holzlamelle befindet, und

45

IIC die beleimten Holzlamellen miteinander so in Kontakt bringt, daß sich jeweils beide Komponenten (a) und (b) zwischen 2 zu verleimenden Holzlamellen befinden.

- 5 Beim getrennten Auftragen der Komponenten (a) und (b) werden pro Flächeneinheit in Schritt IIB oder IIC Komponente (a) zu (b) im Verhältnis 0,2:1,0 bis 0,5:1,0, bevorzugt 0,3:1,0 bis 0,4:1,0, auf die Holzlamellen aufgetragen.
- 10 Die Gesamtmenge an Komponente (a) und (b) bzw. an Leimflotte, die in den Schritten IIB, IIC bzw. Ia auf die Holzlamellen aufgebracht wird, beträgt üblicherweise 350 bis 500 g/m².

- Das Miteinander-in-Kontakt-bringen der mit der Leimflotte bzw.
- 15 den einzelnen Komponenten beschichteten Holzlamellen gemäß Schritt IIIa, IIB bzw. IIC erfolgt im allgemeinen unter Anwendung eines Drucks von 0,6 bis 1,0 N/mm². Dieser Druck wird im allgemeinen für die Zeitdauer, die der Leim zum Aushärten benötigt, was nach ca. 112 - 14 h bei 20°C der Fall ist, aufrecht erhalten. Die
- 20 Aushärtung wird üblicherweise bei Raumtemperatur vorgenommen, bei höheren Temperaturen verkürzt sich die Aushärtezeit entsprechend.

- Die Leimflotten zeichnen sich insbesondere durch eine Gebrauchsfähigkeit nach ihrer Herstellung, d.h. dem Vermischen der Komponenten (a) und (b) aus. Sie zeichnen sich weiterhin durch vorteilhafte rheologische Eigenschaften aus. Aufgrund ihrer Strukturviskosität und Thixotropie laufen sie nicht an senkrecht stehenden beleimten Holzlamellen herunter und ziehen keine Fäden.
- 25

- 30 Insbesondere verfügen die mit dem erfindungsgemäßen Zweikomponenten-Leimsystem hergestellten BS-Hölzer über ausgezeichnete mechanische Eigenschaften, die auch in der Außenanwendung erhalten bleiben.

35 Beispiele

Herstellung der Härtermischungen

Härtermischung 1

- 40 4000 g einer 10-%igen Polyvinylalkohol-Lösung, 642 g Wasser, 1058 g 85-%ige Ameisensäure, 200 g Propylencarbonat, 600 g Resorcin, 3000 g China Clay und 500 g Cellulosefaser wurden nacheinander unter Rühren mit einem schnelldrehenden Rührer innig
- 45 vermischt und gründlich homogenisiert.

Der fertige Härter hatte folgende Kenndaten:

	Dichte bei 20°C [g/ml]	1,315
5	Viskosität bei 20°C, Scherung 30/s [mPa*s]	4802
	pH-Wert bei 20°C, gemessen mit Glaselektrode	1,3.

Härtermischung 2

- 10 5320 g einer 10,6-%igen Polyvinylalkohol-Lösung, 239 g Wasser, 941 g 85-%ige Ameisensäure, 3000 g China Clay und 500 g Cellulosefaser wurden nacheinander unter Rühren mit einem schnelldrehenden Rührer innig vermischt und gründlich homogenisiert.

15

Der fertige Härter hatte folgende Kenndaten:

	Dichte bei 20°C [g/ml]	1,265
	Viskosität bei 20°C, Scherung 30/s [mPa*s]	5659
	pH-Wert bei 20°C, gemessen mit Glaselektrode	1,4.

20

Herstellung der Melaminharze

Melaminharz A

- 25 Eine Mischung aus 2515 g (33,5 mol) einer 40%igen Formaldehyd-lösung, 2575 g eines Harnstoff-Formaldehyd-Vorkondensats (10,7 mol Harnstoff und 42,9 mol Formaldehyd), 300 g Wasser, 15 g Diethylethanolamin und 2380 g (18,9 mol) Melamin wurden auf 95°C erhitzt und 75 Minuten bei dieser Temperatur kondensiert. Danach
- 30 wurde auf 87°C abgekühlt und bis zu einer Viskosität von ca. 900 mPa*s (gemessen bei 20°C) weiterkondensiert. Der pH-Wert wurde über die gesamte Kondensationsdauer bei ca. 9,5 konstant gehalten. Nach dem Abkühlen auf 50°C wurden 415 g (6,9 mol) Harnstoff zugesetzt und weiter auf Raumtemperatur abgekühlt. Die Vis-
- 35 kosität der Mischung betrug 715 mPa*s (gemessen bei 20°C) und hatte einen Feststoffgehalt von 62,5 Gew.-%. In dieses Harz wurden 100 g Caprolactam, 600 g Ethylenglykol sowie 850 g Cellulose homogen eingeührt.

- 40 Das fertige Harz hatte folgende Kenndaten:

	Viskosität	2480 mPa*s
	Feststoffgehalt	65,2 Gew.-%
	pH-Wert	9,2
	Gelierzzeit (3 g 34%ige Ameisensäure, 40°C)	55 Minuten.

45

Melaminharz B

- Eine Mischung aus 2515 g (33,5 mol) einer 40%igen Formaldehyd-lösung, 2575 g eines Harnstoff-Formaldehyd-Vorkondensats
- 5 (10,7 mol Harnstoff und 42,9 mol Formaldehyd), 300 g Wasser, 15 g Diethylethanolamin und 2380 g (18,9 mol) Melamin wurden auf 93°C erhitzt und 90 Minuten bei dieser Temperatur bis zu einer Viskosität von ca. 600 mPa*s (gemessen bei 20°C) kondensiert. Der pH-Wert wurde über die gesamte Kondensationsdauer konstant gehalten.
- 10 Nach dem Abkühlen auf 50°C wurden 415 g (6,9 mol) Harnstoff zugesetzt und weiter auf Raumtemperatur abgekühlt. Die Viskosität der Mischung betrug 548 mPa*s (gemessen bei 20°C) und hatte einen Feststoffgehalt von 62,4 Gew.-%. In dieses Harz wurden 850 g Diethylenglykol sowie 950 g Cellulose homogen eingerührt.
- 15 Das fertige Harz hatte folgende Kenndaten:
- | | |
|-----------------|-------------|
| Viskosität | 2380 mPa*s |
| Feststoffgehalt | 65,6 Gew.-% |
| pH-Wert | 9,1 |
- 20 Gelierzeit (3 g 34%ige Ameisensäure, 40°C) 58 Minuten.

Melaminharz C

- Eine Mischung aus 4550 g (60,7 mol) einer 40%igen Formaldehyd-lösung, 350 g eines Harnstoff-Formaldehyd-Vorkondensats (1,5 mol Harnstoff und 5,8 mol Formaldehyd), 15 g Diethylethanolamin und 2700 g (21,4 mol) Melamin wurden auf 97°C erhitzt und 90 Minuten bei dieser Temperatur bis zu einer Viskosität von ca. 580 mPa*s (gemessen bei 20°C) kondensiert. Der pH-Wert wurde über die gesamte Kondensationsdauer konstant gehalten. Nach dem Abkühlen auf
- 30 50°C wurden 438 g (7,3 mol) Harnstoff zugesetzt und weiter auf Raumtemperatur abgekühlt. Die Viskosität der Mischung betrug 450 mPa*s (gemessen bei 20°C) und hatte einen Feststoffgehalt von 59,1 Gew.-%. In dieses Harz wurden 200 g Caprolactam, 300 g
- 35 1,4-Butandiol, 500 g Ethylenglykol sowie 947 g Cellulose homogen eingerührt.

- Das fertige Harz hatte folgende Kenndaten:
- | | |
|--------------------|-------------|
| Viskosität | 2270 mPa*s |
| 40 Feststoffgehalt | 63,5 Gew.-% |
| pH-Wert | 9,4 |
- Gelierzeit (3 g 34%ige Ameisensäure, 40°C) 42 Minuten.

- Die physikalischen Eigenschaften der Härtermischungen und der Me-
- 45 laminharze wurden auf folgende Weise ermittelt:

11

Die Viskositäten wurden nach DIN 53019 mit einem Rotationsviskosimeter bei 20°C gemessen. Die Feststoffgehalte wurden nach DIN 12605 gemessen, wobei 1 g der Substanz in ein flaches Wägegläschen mit 3,5 cm Durchmesser eingewogen und 2 h bei 120°C im Trockenschrank getrocknet wird.

Die pH-Messungen erfolgen nach DIN 53785/ISO 1148.

Zur Messung der Gelierzeit wurden 100 g Melaminharz mit 3 g eines 34 Gew.-% Ameisensäure gemischt und auf 40°C erwärmt. Die Gelierzeit ist die Zeit zwischen der Zugabe des Härters und dem Erstarren der Probe.

Anwendungstechnische Prüfungen

15

Für anwendungstechnische Prüfungen wurde aus 100 Gew.-Teilen Melaminharz und 20 Gew.-Teilen Härtermischung eine homogen vermischte gebrauchsfertige Leimflotte hergestellt. Die Prüfungen erfolgten nach den Vorschriften der DIN 68141, Ausgabe Oktober 1969 sowie nach DIN EN 391, Ausgabe November 1990 in Verbindung mit DIN EN 386, Ausgabe November 1990. Es wurden im einzelnen geprüft:

25

Prüfung I Gebrauchsdauer, DIN 68141 Absatz 2.1.2

Prüfung II Offene Antrockenzeit, DIN 68141 Absatz 2.1.3

Prüfung III Einfluß der Fugendicke und unterschiedlicher Lagerungsfolgen auf die Bindefestigkeit, DIN 68141 Absätze 2.1.1 (A) und 2.2.3 (B)

Prüfung IV Einfluß des Raumklimas auf die Abbindegeschwindigkeit, DIN 68141 Absatz 2.3 a) nach 24 Stunden

Prüfung V Delaminierungsbeständigkeit, DIN pr EN 386

Prüfung VI Optische Beurteilung der Leimfugenfarbe und deren Nachdunkelungsverhalten.

Die Prüfungen wurden an folgenden Leimflotten durchgeführt:

45

Leimflotte 1

Melaminharz A mit Härtermischung 1

5 Leimflotte 2

Melaminharz C mit Härtermischung 2

Leimflotte 3

10

Handelsübliches Phenol-Resorcin-Formaldehyd-Harz (Kauresin® Leim 460 flüssig der BASF AG) mit einem handelsüblichen Härter für Phenolharze auf Basis von Paraformaldehyd und geringen Mengen einer Carbonsäure (Kauresin® Härter 466 Pulver der BASF AG).

15

Die Ergebnisse der anwendungstechnischen Prüfungen können Tabellen 1 und 2 entnommen werden.

Tabelle 1:

20

Bindefestigkeiten (N/mm^2) von Verleimungen nach DIN 68141 mit unterschiedlicher Fugendicke nach Lagerungsfolgen DIN 53254, Ausgabe Januar 1987

25

Leimflotte	Prüfung III A Lagerungsfolge			Prüfung III B Lagerungsfolge			Prüfung IV
	1	13	14	1	13	14	
1	10,16	6,67	10,14	8,90	6,21	7,84	6,26
2	10,39	7,08	9,38	8,40	6,22	6,91	5,26
3	11,30	8,11	10,94	11,22	6,84	9,02	5,24

30

35

40

45

Tabelle 2:

Ergebnisse aus den Prüfungen der Gebrauchsdauer und offenen Antrockenzeit nach DIN 68141 sowie der Delaminierung nach 5 DIN pr EN 391 und 386 und der optischen Beurteilung der Leimfugenfarbe

10	Leim- flotte	Gebrauchs- dauer (min) 20°C/65% r.L.	Offene Antrockenzeit (min) Auftrag 400 g/m ²		Delaminierung nach 3 Tagen		Optische Beurteilung
			Buche	Fichte	Gesamt- fuge %	Einzel- fuge %	
15	1	105	120	130	2,4	10,4	helle Leim- fuge ge- ringe Nach- dunkelung
20	2	120	167	150	0	0	helle Leim- fuge keine Nachdunke- lung
	3	235	135	135	0	0	dunkel rot- braun

25

30

35

40

45

Patentansprüche

1. Zweikomponenten-Leimsystem, das für die Herstellung von
5 Brett-Schichtholz (BS-Holz) geeignet ist, bestehend aus
 - a) einer wässrigen Härtermischung (Komponente (a)), enthaltend
 - 10 a1) 3 bis 15 Gew.-% einer Bronstedt-Säure
 - a2) 20 bis 40 Gew.-% eines mineralischen Füllstoffs
 - a3) 2 bis 8 Gew.-% eines Verdickungsmittels
 - 15 a4) 40 bis 60 Gew.-% Wasser
 - und
 - 20 b) einem Melaminharz (Komponente (b)).
2. Zweikomponenten-Leimsystem nach Anspruch 1, wobei die wässrige Härtermischung (a) zusätzlich einen organischen Füllstoff enthält.
- 25 3. Zweikomponenten-Leimsystem nach Anspruch 1 oder 2, wobei die Komponente (a) zusätzlich Resorcin enthält.
4. Zweikomponenten-Leimsystem nach den Ansprüchen 1 bis 3, enthaltend eine Komponente (b) aus
 - 30 b1) Melamin
 - b2) 2,1 bis 8,4 mol Formaldehyd pro Mol Melamin
 - 35 b3) 0 bis 1,0 mol einer weiteren Verbindung, die fähig ist, mit Formaldehyd in einer Polykondensations- oder -additionsreaktion zu reagieren, pro Mol Formaldehyd.
- 40 5. Verfahren zur Herstellung von aus Holzlamellen aufgebautem BS-Holz unter Verwendung des Zweikomponenten-Leimsystems nach den Ansprüchen 1 bis 4, dadurch gekennzeichnet, daß man
 - Ia durch Vermischung der Komponenten (a) und (b) eine Leimflotte herstellt,
 - 45

15

IIa beleimte Holzlamellen herstellt, indem man die Leimflotte einseitig oder beidseitig auf Holzlamellen aufträgt, und

5 IIIa die beleimten Holzlamellen miteinander oder mit unbeleimten Holzlamellen so in Kontakt bringt, daß sich eine Leimschicht zwischen je zwei zu verleimenden Holzlamellen befindet,

10 mit der Maßgabe, daß die Arbeitsschritte Ia bis IIIa innerhalb eines Zeitraums von 45 bis 150 min durchgeführt werden.

6. Verfahren zur Herstellung von BS-Holz unter Verwendung eines Zweikomponenten-Leimsystems nach den Ansprüchen 1 bis 4, dadurch gekennzeichnet, daß man

15 Ib beleimte Holzlamellen herstellt, indem man getrennt voneinander die Komponenten (a) und (b) einseitig oder beidseitig auf Holzlamellen aufträgt, so daß sowohl Komponente (a) als auch Komponente (b) auf beiden Seiten oder
20 einer Seite der Holzlamelle aufgetragen ist, und

IIb die beleimten Holzlamellen miteinander oder mit unbeleimten Holzlamellen so in Kontakt bringt, daß sich die beiden Leimkomponenten zwischen jeweils 2 Holzlamellen be-
25 finden.

7. Verfahren zur Herstellung von BS-Holz unter Verwendung eines Zweikomponenten-Leimsystems nach den Ansprüchen 1 bis 4, dadurch gekennzeichnet, daß man

30 Ic beleimte Holzlamellen herstellt, indem man getrennt voneinander die Komponenten (a) und (b) einseitig oder beidseitig auf Holzlamellen aufträgt, so daß sich nur jeweils eine Komponente des Zweikomponenten-Leimsystems auf der
35 gleichen Seite einer Holzlamelle befindet und

IIc die beleimten Holzlamellen miteinander so in Kontakt bringt, daß sich jeweils beide Komponenten (a) und (b) zwischen 2 zu verleimenden Holzlamellen befinden.

40 8. BS-Holz, erhältlich nach einem Verfahren nach den Ansprüchen 5 bis 7.

45

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International Application No
PCT/EP 97/00377

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER
IPC 6 C09J161/30

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)
IPC 6 C09J C08L

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practical, search terms used)

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category *	Citation of documents, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	EP 0 427 058 A (BASF AG) 15 May 1991 see claims 1-10	
A	DE 33 43 670 A (BASF AG) 13 June 1985 see claims 1-3	

☐ Further documents are listed in the continuation of box C.

☒ Patent family members are listed in annex.

* Special categories of cited documents:

- *A* document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance
- *E* earlier document but published on or after the international filing date
- *L* document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)
- *O* document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means
- *P* document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed

- *T* later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention
- *X* document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone
- *Y* document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art.
- *A* document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search

7 May 1997

Date of mailing of the international search report

26.05.97

Name and mailing address of the ISA
European Patent Office, P.B. 5818 Patendaan 2
NL - 2280 HV Rijswijk
Tel. (+31-70) 340-2040, Tx. 31 651 epo nl,
Fax (+31-70) 340-3016

Authorized officer

Stienon, P

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

information on patent family members

International Application No

PCT/EP 97/00377

Patent document cited in search report	Publication date	Patent family member(s)	Publication date
EP 0427058 A	15-05-91	DE 3936855 A AT 109180 T DE 59006587 D HR 931375 A PL 164656 B	08-05-91 15-08-94 01-09-94 31-08-96 31-08-94
DE 3343670 A	13-06-85	NONE	

INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

Internationales Aktenzeichen
PCT/EP 97/00377

A. KLASSIFIZIERUNG DES ANMELDUNGSGEGENSTANDES
IPK 6 C09J161/30

Nach der Internationalen Patentklassifikation (IPK) oder nach der nationalen Klassifikation und der IPK

B. RECHERCHIERTE GEBIETE

Recherchierte Mindestprüfstoff (Klassifikationssystem und Klassifikationssymbole)
IPK 6 C09J C08L

Recherchierte aber nicht zum Mindestprüfstoff gehörende Veröffentlichungen, soweit diese unter die recherchierten Gebiete fallen

Während der internationalen Recherche konsultierte elektronische Datenbank (Name der Datenbank und evtl. verwendete Suchbegriffe)

C. ALS WESENTLICH ANGESEHENE UNTERLAGEN

Kategorie*	Bezeichnung der Veröffentlichung, soweit erforderlich unter Angabe der in Betracht kommenden Teile	Betr. Anspruch Nr.
A	EP 0 427 058 A (BASF AG) 15.Mai 1991 siehe Ansprüche 1-10	
A	DE 33 43 670 A (BASF AG) 13.Juni 1985 siehe Ansprüche 1-3	

☐ Weitere Veröffentlichungen sind der Fortsetzung von Feld C zu entnehmen

☒ Siehe Anhang Patentfamilie

* Besondere Kategorien von angegebenen Veröffentlichungen :

"A" Veröffentlichung, die den allgemeinen Stand der Technik definiert, aber nicht als besonders bedeutsam anzusehen ist

"E" älteres Dokument, das jedoch erst am oder nach dem internationalen Anmeldedatum veröffentlicht worden ist

"L" Veröffentlichung, die geeignet ist, einen Prioritätsanspruch zweifelhaft erscheinen zu lassen, oder durch die das Veröffentlichungsdatum einer anderen (im Recherchenbericht genannten) Veröffentlichung belegt werden soll oder die aus einem anderen besonderen Grund angegeben ist (wie ausgeführt)

"O" Veröffentlichung, die sich auf eine mündliche Offenbarung, eine Benutzung, eine Ausstellung oder andere Maßnahmen bezieht

"P" Veröffentlichung, die vor dem internationalen Anmeldedatum, aber nach dem beanspruchten Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist

"T" Spätere Veröffentlichung, die nach dem internationalen Anmeldedatum oder dem Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist und mit der Anmeldung nicht kollidiert, sondern nur zum Verständnis des der Erfindung zugrundeliegenden Prinzips oder der ihr zugrundeliegenden Theorie angegeben ist

"X" Veröffentlichung von besonderer Bedeutung, die beanspruchte Erfindung kann allein aufgrund dieser Veröffentlichung nicht als neu oder auf erfinderischer Tätigkeit beruhend betrachtet werden

"Y" Veröffentlichung von besonderer Bedeutung, die beanspruchte Erfindung kann nicht als auf erfinderischer Tätigkeit beruhend betrachtet werden, wenn die Veröffentlichung mit einer oder mehreren anderen Veröffentlichungen dieser Kategorie in Verbindung gebracht wird und diese Verbindung für einen Fachmann naheliegend ist

"Z" Veröffentlichung, die Mitglied derselben Patentfamilie ist

Datum des Abschlusses der internationalen Recherche

7.Mai 1997

Abmeldedatum des internationalen Recherchenberichts

26.05.97

Name und Postanschrift der Internationalen Recherchenbehörde
Europäisches Patentamt, P.B. 5818 Patentlaan 2
NL - 2280 HV Rijswijk
Tel. (+ 31-70) 340-2040, Tx. 31 651 epo nl,
Fax (+ 31-70) 340-3016

Bevollmächtigter Beichtsteter

Stienon, P

INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

Angaben zu Veröffentlichungen, die zur selben Patentfamilie gehören

Internationales Aktenzeichen

PCT/EP 97/00377

Im Recherchenbericht angeführtes Patentdokument	Datum der Veröffentlichung	Mitglied(er) der Patentfamilie	Datum der Veröffentlichung
EP 0427058 A	15-05-91	DE 3936855 A	08-05-91
		AT 109180 T	15-08-94
		DE 59006587 D	01-09-94
		HR 931375 A	31-08-96
		PL 164656 B	31-08-94

DE 3343670 A	13-06-85	KEINE	
